

Int. Cl<sup>4</sup>  
C 01 B 33/12

Identification code:

Patent Office Reference Number  
E-7918-4G

43. Published: 25 November 1988

Examination request: Not made Number of inventions: 1 (Total pages: 4)

54. Title of invention: Preparation of silicic acid

21. Patent application: Sho 62-121371

22. Application date: 20 May 1987

72. Inventor: YAMANA Jun  
Nihon Dokan Kabushiki Kaisha  
[Japan Copper Tubes Company Limited]  
1-2 Marunouchi 1-chome, Chiyoda-ku, Tokyo

72. Inventor: SAKAI Tadayuki  
Nihon Dokan Kabushiki Kaisha  
[Japan Copper Tubes Company Limited]  
1-2 Marunouchi 1-chome, Chiyoda-ku, Tokyo

71. Applicant: Nihon Dokan Kabushiki Kaisha  
[Japan Copper Tubes Company Limited]  
1-2 Marunouchi 1-chome, Chiyoda-ku, Tokyo

### Specification

#### 1. Title of Invention

Preparation of silicic acid

#### 2. Claim

A method of preparing silicic acid characterised in that silicic acid raw material is melted in a melting furnace constructed with walls of fire-proof material, the molten silicic acid is removed from the bottom of the furnace and drawn continuously into a rod and in that cold water is sprayed onto the silicic acid rod, which has the fire-proof material melted onto its superficial layer, cracking and removing this superficial layer.

### 3. Detailed Description of the invention

(Industrial field)

The present invention relates to a method of preparing silicic acid in which the silicic acid is drawn continuously in a rod from a furnace and the fire-proof material adhered to its surface removed to obtain a silicic acid rod with high purity.

(Prior art)

Various techniques of producing silicic acid rods have been developed, including that described in JP 61-178415 (A), which is shown in Figure 3 below.

In the production method used with the equipment shown in Figure 3, raw materials such as quartz and silica are melted in a furnace 1 at a high temperature, the molten silicic acid 4 is drawn from the bottom of the furnace 1, supported by belts 6 and 7, into a rod 5. When hardened, rod 5 is cut into specified lengths by cutter 11.

(Problems the invention aims to solve)

However the method of the prior art involves the following type of problems. When the molten silicic acid is drawn from the bottom of the furnace, since the viscosity of the molten silicic acid is very high, it detaches and carries with it part of the fire proof material of the furnace and this is melted onto the surface of the rod. The silicic acid rod may be used for IC sealant materials, fire-proof materials, as a raw material for high-grade glass, for lost-wax coating, catalysts, cosmetics etc. When the application is for IC sealants, in particular, a purity of at least 99.9% is required and it is a condition that it contains no contaminants. One such contaminant is zirconia. A content of zirconia as low as a few ppm disqualifies the materials from being used as an IC sealant. However, since the temperature of the silicic acid furnace is high, 2000~2200°C, zirconia bricks are used as firebricks and some admixture of zirconia is unavoidable. Because of this, in the prior art the fire proof material is removed from the surface of the silicic acid rod using a diamond grinder after the rod has been cut up but, since silicic acid is hard, it is difficult to grind away all of the layer into which the fire-proof material has settled. Accordingly, after some of this has been removed, it has to be pulverised in a pulverisation process and the remaining fire-proof material, or at least a small part of it, removed by a separate process. Accordingly, the product yield by this method is very low, at 80%.

Thus, the method of the prior art involves the separate and laborious processes of grinding and pulverisation and also a major decrease in product yield

The present invention, which was made with the aim of solving the above problems, has the object of proposing a method of manufacturing silicic acid by which the fire-proof material is

automatically separated and removed from the silicic acid rod as it is formed and the product yield is improved.

(Means by which the problems are solved)

The present invention is a method of producing silicic acid in which the molten silicic acid rod, with fire-proof materials adhering to its superficial layer, is sprayed with cold water so that the superficial layer is cracked and then detached, thus removing fire-proof material from the silicic acid rod obtained.

(Actions)

When cold water is sprayed onto the surface of a silicic acid rod which has been drawn from a furnace and is still hot, the surface is rapidly cooled and multiple cracks are generated in the superficial layer. This cracked superficial layer then separates into discrete fragments, which spontaneously fall off. Thus a consistent thickness of the superficial layer of the silicic acid rod is detached and the layer containing the fire-proof material is removed. The state of the cracking thus generated is determined by the rate at which the surface of the silicic acid rod is cooled and in order to generate excess cracking and remove the superficial layer efficiently, it is necessary to control appropriately the surface temperature of the silicic acid rod immediately before it is sprayed with cold water.

Table 1 shows the results of an examination of the relationship between the surface temperature of the silicic acid rod immediately before it is sprayed with cold water and the rate of removal of fire-proof material.

Table 1. Relationship between superficial layer removal rate and surface temperature

Temperature (°C)	1350	1400	1450	1500	1600	1700	1750
Removal rate (%)	80	95	100	100	100	100	100

As is clear from the table, if cold water is sprayed onto the surface when it is at a temperature of 1400°C or lower, there is inadequate cracking and the removal rate does not reach 100%.

Therefore, the surface temperature of the silicic acid rod at which it is sprayed with cold water should be at least 1450°C.

There is no particular necessity to establish an upper limit for the temperature but when the internal temperature of the furnace is in the range 2000~2200°C, the temperature of the surface when it is first possible to spray it with water is 1800°C and this is in effect the upper

limit. It is possible to adjust the depth of the cracking of the surface of the silicic acid rod directly by adjusting the surface temperature and it is thus possible to remove all contaminants by adjusting the thickness of the layer removed according to the depth of the adhered fire-proof materials.

#### (Examples)

Below the invention is described in greater detail through examples.

Figure 1 is a cross-section of one embodiment of the equipment used to manufacture silicic acid rod by the method according to the invention. In Figure 1, 1 is a furnace constructed of zirconia bricks 2 used as fire-proof material in which silicic acid raw materials are heated by burner 3 to a high temperature to produce molten silicic acid 4. 5 is molten silicic acid rod formed from molten silicic acid 4 being drawn from the furnace and supported by belts 6 and 7. 8 is a spray nozzle for cold water.

Below is a description of a concrete example of the production of a silicic acid rod using the equipment structured in this way.

Silica, quartz and other raw materials were placed in furnace 1 was heated by burner 3 to about 2000°C to produce molten silicic acid 4 and this molten silicic acid was drawn from the bottom of the furnace, supported by belts 6 and 7 to form continuously a silicic acid rod 5, 270 mm in diameter. The surface temperature of this silicic acid rod 5 at the outlet of melting furnace 1, as measured using a radiation thermometer (not shown), was 1800°C. As shown in Figure 2, cold water was sprayed, at a continuous rate of 3 litres per minute, through spray nozzle 8 onto the surface of silicic acid rod 5 at a position immediately below the temperature measurement point. At the same time as this cold water was sprayed, multiple cracks 10 were generated on the surface of silicic acid rod 5 and the superficial layer split into fragments and was detached. The thickness of the superficial layer thus removed was 3 mm and this thickness was almost completely consistent. There was absolutely no remainder of the adhered zirconia bricks 2 in the silicic acid rod 5 thus obtained. The silicic acid yield was 96%.

The temperature fall of the surface of the silicic acid rod 5 when it was sprayed with cold water should be in the range 50°C~150°C. If the fall in temperature is less than 50°C, there is inadequate cracking and it is not possible to remove the entire surface. On the other hand, it is unnecessary for it to be greater than 150°C.

The fall in temperature is controlled by adjusting appropriately the surface temperature of the silicic acid rod 5 immediately before it is sprayed with cold water and the quantity of cold water used. It is necessary that the position of the cold water spray nozzle can be altered in

order to adjust appropriately the surface temperature of the silicic acid rod immediately before it is sprayed.

(Effects of the invention)

As is clear from the above description, when the method according to the invention is used, it is possible to remove to the thickness necessary a superficial layer of the silicic acid rod containing adhered fire-proof material and it is thus possible to achieve a major improvement in product yield.

#### 4. Simple Description of the Figures

Figure 1 is a cross-section of one example of the equipment used for the method of producing silicic acid according to the invention. Figure 2 is an explanatory diagram showing cracking of the superficial layer of the silicic acid caused when it is sprayed with cold water. Figure 3 is a cross-section of equipment used in the method of producing silicic acid of the prior art.

1 ... melting furnace; 2 ... fire-proof material; 3 ... burner; 4 ... molten silicic acid; 5 ... silicic acid rod; 6, 7 ... belts; 8 ... cold water spray nozzle; 10 ... cracks; 11 ... cutter

The same numbers are used for the same parts, or equivalent, in all figures.

Fig. 2 Cold water 8

8 Cold water

⑫ Int. Cl.  
C 01 B 33/12

特許庁

特許庁  
E-7918-4G

⑬ 公開 昭和63年(1988)11月25日

審査請求 未請求 発明の数 1 (全4頁)

⑭ 発明の名称 ケイ酸の製造方法

⑮ 特 願 昭62-121371

⑯ 出 願 昭62(1987)5月20日

⑰ 発 明 者 山 名 淳 東京都千代田区丸の内1丁目1番2号 日本钢管株式会社  
内

⑱ 発 明 者 酒 井 忠 之 東京都千代田区丸の内1丁目1番2号 日本钢管株式会社  
内

⑲ 出 願 人 日本钢管株式会社 東京都千代田区丸の内1丁目1番2号

明 細 書

1. 発明の名称

ケイ酸の製造方法

2. 特許請求の範囲

耐火物で炉壁を構成した溶融炉によりケイ酸の原料を溶融し、その溶融したケイ酸を炉下部より引き抜いてケイ酸の溶融体を連続的に製造する方法において、表面に耐火物が溶着したケイ酸の溶融体に溶融水を噴霧して凝縮を与え、凝縮を凝縮することを特徴とするケイ酸の製造方法。

3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明は溶融したケイ酸を溶融炉から引き抜く際に溶着した耐火物を連続的に除去し、高純度のケイ酸の溶融体を製造する方法に関する。

(従来の技術)

ケイ酸の溶融体の製造方法については種々の技

術が知られているが、例えば、特開昭51-173415には第3図に示す装置が記載されており、その製造方法が示されている。

第1図の装置によるケイ酸の溶融体の製造方法は、高純度の溶融したケイ酸を溶融炉1内で、溶融炉1の下部から、バンド5、7で挟持して引き抜いて溶融体に凝縮し、凝縮したケイ酸の溶融体5を収容容器11で一層の凝縮に切替する方法であった。  
(発明が解決しようとする課題)

しかし、従来の方法には次のような問題点があった。溶融炉の下部から溶融したケイ酸を引き抜く際、溶融したケイ酸は非常に粘性が高いため、炉壁の耐火物の一部を剥離して溶着し、ケイ酸の溶融体の製造に障害するという問題があった。ケイ酸の溶融体の用途としては、ICの封止材をはじめとして、耐火物、高純ガラスの原料、ロストワックスの灰、触媒、化粧品等に使用されるが、特にICの封止材として使用される場合には99.9%以上の純度が要求され、且つ有害物質を含まな

いことが条件とされている。また、溶融炉の一  
つとしてジルコニアが挙げられており、これが融  
解でも混入するとIC封止材としては不適合と  
なる。しかし、ケイ酸の融解率は2000~2200℃と  
高温であるため、耐火物にはジルコニア複合を使  
用しており、ジルコニアの混入に避けられない。  
このため、従来は、切削されたケイ酸の塊状体の  
表面をダイヤモンドグラインダー等で研削して耐  
火物を生成していたが、ケイ酸に包み込んで耐火物  
が溶着している厚さすべてを研削することは容易  
ではなく、ある程度除去した後、破砕工程に送っ  
て溶かし、耐火物が少量でも溶着している塊は選  
別除去して製品を導いていた。従って、この方法に  
よる製品歩留は非常に低く、80%程度であった。

このように、従来の方法においては、研削や破  
砕後の選別作業という余分な工程と多大の労力を  
要すると共に製品歩留を大幅に低下させていた。

本発明は以上のような問題点を解消するため  
になされたものであり、溶融した耐火物をケイ酸の  
塊状体の融解時に自動的に選別除去し、製品歩留

を向上させることができるケイ酸の融解方法の提  
供を目的とする。

(問題点を解決するための手段)

本発明は炭素に耐火物が溶着したケイ酸の塊状  
体に冷卻水を噴霧して急冷を導き、炭素を剥離し  
て、耐火物を融解するケイ酸の融解方法である。

(作用)

溶融炉から引き抜かれ、未だ高温の状態でいる  
ケイ酸の塊状体の表面に冷卻水を噴霧すると、炭  
素は急冷され、炭素部に多数の亀裂が発生する。  
そして、この亀裂した炭素部は小片に分離されて  
自然に落下し、ケイ酸の塊状体は炭素が薄一層の  
厚さに剥離され、耐火物の溶着層は生成される。  
発生する亀裂の状況はケイ酸の塊状体の炭素の  
剥離により決まるので、過度の急冷を発生させて  
耐火物を急激に剥離するためには、冷卻水噴霧  
量のケイ酸の塊状体の表面温度を適切に管理す  
る必要がある。

第1図は冷卻水噴霧直前のケイ酸の塊状体の表  
面温度と炭素の剥離率との関係を述べた図表であ

る。

表1. 炭素の剥離率と表面温度との関係

温度(℃)	1350	1400	1450	1500	1600	1700	1750
剥離率(%)	30	95	100	100	100	100	100

この表によれば、表面温度1400℃以下で冷卻水  
を噴霧した場合に炭素の剥離率が100%に達して  
おらず急冷の発生が不十分であることを示してい  
る。

従って、冷卻水を噴霧するのに適したケイ酸の  
塊状体の表面温度は1450℃以上である。

なお、炭素の剥離率については特に限定する必要  
はないが、溶融炉内の温度が2000~2200℃の場合、  
冷卻水の噴霧が可能となる部分のケイ酸の塊状体  
の表面温度は約1800℃となり、これが上限となる。  
また、炭素部の急冷の割合はケイ酸の塊状体の表  
面温度と噴霧水量によって適宜調整することがで  
き、耐火物が溶着した層の厚さによって剥離率を  
高め耐火物の除去を完全に行うことができる。

(実施例)

以下本発明の実施例について説明する。

第1図は本発明の方法によりケイ酸を融解した  
装置の一実施例を示す図面である。第1図にお  
いて、1は耐火物であるジルコニア複合2で成型  
を施し、バーナ3によりケイ酸の塊状体を炭素に  
加熱して溶融ケイ酸4を生成させる溶融炉、5は  
溶融ケイ酸4をペンド6、7で冷却して溶融炉か  
ら引き抜いて形成されたケイ酸の塊状体である。  
そして、8は冷卻水の噴霧ノズルである。

このように形成された塊状体を冷却してケイ酸の  
塊状体を融解した実施例については後述する。

溶融炉1内に投入された塊状、炭素等の原料を  
バーナ3で約2000℃に加熱して溶融したケイ酸4  
を生成させ、この溶融したケイ酸4をペンド6、  
7で冷却して引き抜き、図2(a)のケイ酸の塊状体  
5を連続的に形成させた。このケイ酸の塊状体5  
の溶融炉1の出口部における表面温度を熱電  
計(図示せず)で測定したところ1800℃であった。  
第2図で示すように、この表面温度のすぐ下流  
のケイ酸の塊状体5の表面に冷卻水噴霧ノズル8

から冷却水3を分送して供給した。冷却水の噴出と同時に、ケイ酸の溶状体5の表面には多数の気泡10が発生し、この気泡に小片となって脱落した。脱落した気泡の厚さは約3mmで全面が均一な状態であり、得られたケイ酸の溶状体5はシリコンで厚さ2の溶状体5を全く包み込まなかった。そして、得られたケイ酸の歩留は約98%であった。

なお、冷却水の流量によりケイ酸の溶状体5の表面の急激する所の温度の温度低下は50℃～150℃程度である。温度低下が30℃未満であると気泡の発生が不十分であり、すべての気泡を制御することができず、また150℃を超える温度低下をさせる必要はない。

この温度の急激な低下の場所を冷却水噴出直前のケイ酸の溶状体5の表面と冷却水を適宜調整することによってなされる。そして、冷却水噴出直前のケイ酸の溶状体5の表面を調整するため、冷却水噴出ノズルの位置を調整可能にすることも必要である。

(発明の効果)

以上の説明で明らかになる、本発明の方法によれば、溶融した溶状体5をケイ酸の溶状体の表面を適宜的に見つけ必要量を供給することができる。製品歩留を大幅に向上させることができる。

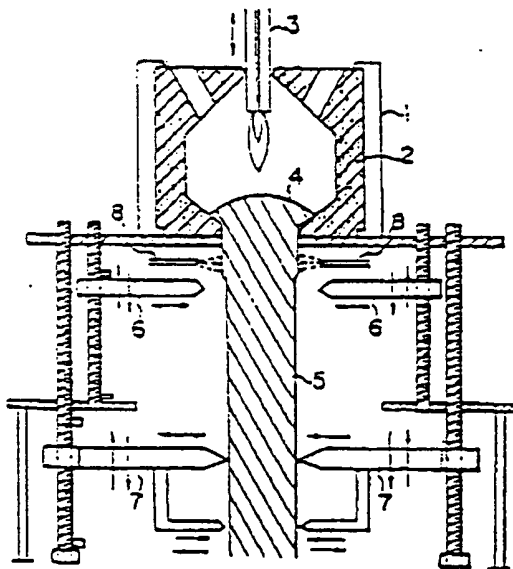
#### 4. 図面の簡単な説明

第1図は本発明の方法によりケイ酸を製造する装置の一実施例を示す断面図、第2図は冷却水の噴出によりケイ酸の溶状体の表面に気泡が発生する状態を示した図、第3図は従来の製造方法によりケイ酸を製造する装置の断面図である。

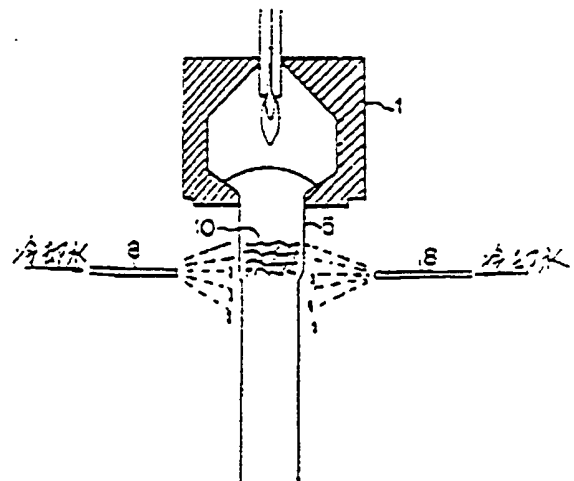
- 1—溶融炉、 2—溶状体、 3—バーナ、
- 4—溶融したケイ酸、 5—ケイ酸の溶状体、
- 6、7—バンド、 8—冷却水噴出ノズル、
- 10—気泡、 11—切取部

なお、図中、同一番号に同一、又は相当部分を示す。

発明者 三井物産株式会社

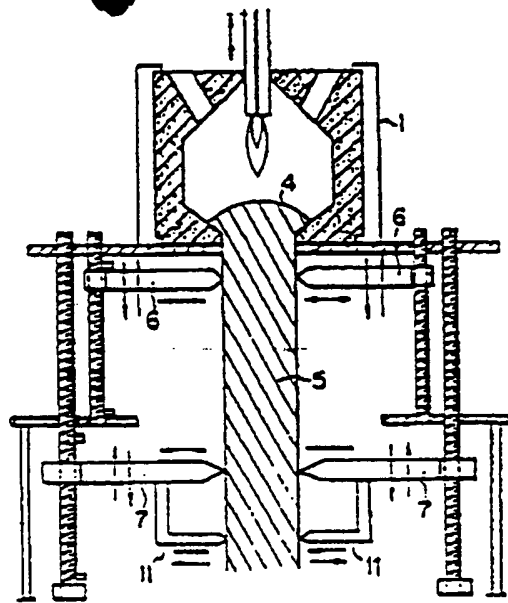


第1図



第2図





第 3 图